

(Translation of the first page of the Certified Copy)

PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

This is to certify that the annexed is a true copy of  
the following Application as filed with this office.

Date of Application : July 31, 2002

Application Number : Patent Application No. 2002-223896

Applicant : SUMITOMO METAL MINING Co., Ltd.

June 4, 2003

Commissioner  
Patent Office  
Shinichiro OTA (Sealed)  
Certificate No.

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re application of: **Kenichi FUJITA, et al.**

Group Art Unit: **Not Yet Assigned**

Serial No.: **Not Yet Assigned**

Examiner: **Not Yet Assigned**

Filed: **July 21, 2003**

For: **MASTER BATCH CONTAINING HEAT RADIATION SHIELDING COMPONENT,  
AND HEAT RADIATION SHIELDING TRANSPARENT RESIN FORM AND HEAT  
RADIATION SHIELDING TRANSPARENT LAMINATE FOR WHICH THE  
MASTER BATCH HAS BEEN USED**

**CLAIM FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119**

Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Date: July 21, 2003

Sir:

The benefit of the filing date of the following prior foreign application is hereby requested for the above-identified application, and the priority provided in 35 U.S.C. 119 is hereby claimed:

**Japanese Appln. No. 2002-223896, filed July 31, 2002**

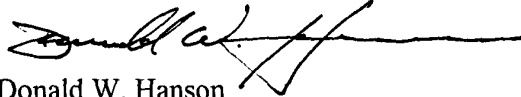
In support of this claim, the requisite certified copy of said original foreign application is filed herewith.

It is requested that the file of this application be marked to indicate that the applicants have complied with the requirements of 35 U.S.C. 119 and that the Patent and Trademark Office kindly acknowledge receipt of said certified copy.

In the event that any fees are due in connection with this paper, please charge our Deposit Account No. 01-2340.

Respectfully submitted,

ARMSTRONG, WESTERMAN & HATTORI, LLP

  
Donald W. Hanson  
Attorney for Applicants  
Reg. No. 27,133

DWH/jaz  
Atty. Docket No. **030812**  
Suite 1000  
1725 K Street, N.W.  
Washington, D.C. 20006  
(202) 659-2930



**23850**

PATENT TRADEMARK OFFICE

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日  
Date of Application:

2002年 7月31日

出 願 番 号  
Application Number:

特願2002-223896

[ ST.10/C ]:

[ JP 2002-223896 ]

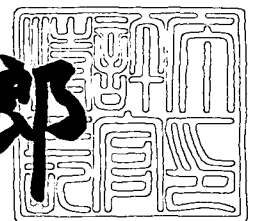
出 願 人  
Applicant(s):

住友金属鉱山株式会社

2003年 6月 4日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3043486

【書類名】 特許願

【整理番号】 S020196P

【提出日】 平成14年 7月31日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 G02B 5/02  
G02B 5/22

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県市川市中国分3丁目18番5号 住友金属鉱山株式会社 中央研究所内

【氏名】 藤田 賢一

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県市川市中国分3丁目18番5号 住友金属鉱山株式会社 中央研究所内

【氏名】 足立 健治

【特許出願人】

【識別番号】 000183303

【住所又は居所】 東京都港区新橋5丁目11番3号

【氏名又は名称】 住友金属鉱山株式会社

【代表者】 福島 孝一

【代理人】

【識別番号】 100095223

【住所又は居所】 東京都豊島区東池袋1丁目48番10号 25山京ビル  
901号

【弁理士】

【氏名又は名称】 上田 章三

【電話番号】 03(3971)8758

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 017455

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9108811

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 熱線遮蔽成分含有マスターバッチとこのマスターバッチが適用された熱線遮蔽透明樹脂成形体並びに熱線遮蔽透明積層体

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

熱線遮蔽透明樹脂成形体を製造するために使用されるマスターバッチにおいて

熱可塑性樹脂と 6 ホウ化物 ( $XB_6$ , 但し、X は、La、Ce、Pr、Nd、Gd、Tb、Dy、Ho、Y、Sm、Eu、Er、Tm、Yb、Lu、Sr および Ca から選択される少なくとも 1 種以上) とを主成分とし、かつ、熱線遮蔽成分である 6 ホウ化物の上記熱可塑性樹脂に対する含有量が熱可塑性樹脂 100 重量部に対して 0.01 重量部以上 20 重量部未満であることを特徴とする熱線遮蔽成分含有マスターバッチ。

【請求項 2】

上記熱可塑性樹脂が、アクリル樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、フッ素系樹脂、ポリオレフィン樹脂およびポリエステル樹脂から選択される少なくとも一種であることを特徴とする請求項 1 記載の熱線遮蔽成分含有マスターバッチ。

【請求項 3】

上記 6 ホウ化物が、平均粒径 1000 nm 以下の微粒子であることを特徴とする請求項 1 または 2 記載の熱線遮蔽成分含有マスターバッチ。

【請求項 4】

上記 6 ホウ化物が、シラン化合物、チタン化合物、ジルコニア化合物から選択される少なくとも 1 種によって表面処理されていることを特徴とする請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の熱線遮蔽成分含有マスターバッチ。

【請求項 5】

請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の熱線遮蔽成分含有マスターバッチを、このマスターバッチの上記熱可塑性樹脂と同種の熱可塑性樹脂成形材料若しくは相溶性

を有する異種の熱可塑性樹脂成形材料により希釈・混練し、かつ、所定の形状に成形することによって得られることを特徴とする熱線遮蔽透明樹脂成形体。

【請求項6】

請求項5記載の熱線遮蔽透明樹脂成形体を他の透明成形体に積層することにより得られることを特徴とする熱線遮蔽透明積層体。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、建築物の屋根材や壁材、自動車、電車、航空機などの開口部に使用される窓材、アーケード、天井ドーム、カーポート等に広く利用される熱線遮蔽成形体の製造に適用されるマスターバッチに係り、特に、可視光透過性が良好でかつ優れた熱線遮蔽機能を有する透明樹脂成形体の製造に適用される熱線遮蔽成分含有マスターバッチとこのマスターバッチが適用された熱線遮蔽透明樹脂成形体並びに熱線遮蔽透明積層体に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

各種建築物や車両の窓、ドア等のいわゆる開口部分から入射する太陽光線には可視光線の他に紫外線や赤外線が含まれている。この太陽光線に含まれている赤外線のうち800～2500nmの近赤外線は熱線と呼ばれ、開口部分から進入することにより室内の温度を上昇させる原因になる。これを解消するために、近年、各種建築物や車両の窓材等の分野では、可視光線を十分に取り入れながら熱線を遮蔽し、明るさを維持しつつ室内の温度上昇を抑制する熱線遮蔽成形体の需要が急増しており、熱線遮蔽成形体に関する特許が多く提案されている。

【0003】

例えば、透明樹脂フィルムに金属、金属酸化物を蒸着してなる熱線反射フィルムを、ガラス、アクリル板、ポリカーボネート板等の透明成形体に接着した熱線遮蔽板（特開昭61-277437号公報、特開平10-146919号公報、特開2001-179887号公報等参照）が提案されている。しかし、この熱線反射フィルム自体が非常に高価でかつ接着工程等の煩雑な工程を要するため高

コストとなる。また透明成形体と反射フィルムの接着性が良くないので、経時変化によりフィルムの剥離が生じるといった欠点を有している。

【 0 0 0 4 】

また、透明成形体表面に、金属若しくは金属酸化物を直接蒸着してなる熱線遮蔽板も数多く提案されているが、この熱線遮蔽板の製造に際しては高真空で精度の高い雰囲気制御を要する装置が必要となるため、量産性が悪く、汎用性に乏しいという問題を有している。

【 0 0 0 5 】

この他、例えば、ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリカーボネート樹脂、アクリル樹脂、ポリエチレン樹脂、ポリスチレン樹脂等の熱可塑性透明樹脂にフタロシアニン系化合物、アントラキノン系化合物に代表される有機近赤外線吸収剤を練り込んだ熱線遮蔽板およびフィルム（特開平 6 - 2 5 6 5 4 1 号公報、特開平 6 - 2 6 4 0 5 0 号公報等参照）が提案されている。しかし、十分に熱線を遮蔽するためには多量の近赤外線吸収剤を配合しなければならず、多量に配合すると可視光線透過能が低下してしまうという課題が残る。また、有機化合物を使用しているため、直射日光に常時曝される建築物や車両の窓材等への適用は耐候性に難があり、必ずしも適当であるとはいえない。

【 0 0 0 6 】

更に、例えば、アクリル樹脂、ポリカーボネート樹脂等の透明樹脂に、熱線反射能を有する酸化チタンあるいは酸化チタンで被覆されたマイカ等の無機粒子を練り込んだ熱線遮蔽板（特開平 2 - 1 7 3 0 6 0 号公報、特開平 5 - 7 8 5 4 4 号公報等参照）も提案されているが、このものでは、熱線遮蔽能を高めるために熱線反射粒子を多量に添加する必要があり、熱線反射粒子の配合量の増大に伴って可視光線透過能が低下してしまう。また、熱線反射粒子の添加量を少なくすると可視光線透過能は高まるものの熱線遮蔽能が低下してしまい、熱線遮蔽能と可視光線透過能を同時に満足させることが困難な問題があった。更に、熱線反射粒子を多量に配合すると、成形体である透明樹脂の物性、特に耐衝撃強度や靱性が低下するという強度面からの問題も有している。

【 0 0 0 7 】



このような技術的背景の下、本発明者らは、熱線遮蔽成分として6ホウ化物微粒子を各種バインダーに含有させた熱線遮蔽用塗布液、およびこの塗布液を各種成形体に塗布後、硬化して得られる熱線遮蔽膜を既に提案している（例えば、特開平11-181336号公報、特開2000-96034号公報、特開2000-169765号公報参照）。

## 【0008】

しかし、これ等提案の中では、熱線遮蔽成形体の製造に適用されるマスターバッチに関しては未開発であった。

## 【0009】

## 【発明が解決しようとする課題】

本発明は、上述したような問題点に着目してなされたもので、その課題とするところは、優れた可視光線透過能を維持しつつ高い熱線遮蔽機能を有する様々な形状の熱線遮蔽透明樹脂成形体について、これを高コストの物理成膜法などを用いることなく簡便な方法で作製することが可能な熱線遮蔽成分含有マスターバッチを提供し、併せてこのマスターバッチが適用された熱線遮蔽透明樹脂成形体並びに熱線遮蔽透明積層体を提供することにある。

## 【0010】

## 【課題を解決するための手段】

このような課題を解決するため、本発明者らは自由電子を多量に保有する6ホウ化物に着目し、種々検討を行った。その結果、これを超微粒子化し、公知の混合手段により熱可塑性樹脂に上記微粒子を均一に分散させて成る熱線遮蔽成分含有マスターバッチの作製に成功するに至った。

## 【0011】

更に、熱線遮蔽成分含有マスターバッチを熱可塑性樹脂成形材料により希釈・混練し、かつ、押出成形、射出成形、圧縮成形等公知の方法により、板状、フィルム状、球面状等の任意の形状に成形することによって、可視光領域に透過率の極大を持つと共に近赤外域に強い吸収を発現して透過率の極小をもつような熱線遮蔽透明樹脂成形体並びに熱線遮蔽透明積層体の作製が可能となることを見出すに至った。本発明はこのような技術的発見に基づき完成されたものである。

【 0 0 1 2 】

すなわち、請求項 1 に係る発明は、

熱線遮蔽透明樹脂成形体を製造するために使用される熱線遮蔽成分含有マスターバッチを前提とし、

熱可塑性樹脂と 6 ホウ化物 ( $XB_6$ , 但し、X は、La、Ce、Pr、Nd、Gd、Tb、Dy、Ho、Y、Sm、Eu、Er、Tm、Yb、Lu、Sr および Ca から選択される少なくとも 1 種以上) とを主成分とし、かつ、熱線遮蔽成分である 6 ホウ化物の上記熱可塑性樹脂に対する含有量が熱可塑性樹脂 100 重量部に対して 0.01 重量部以上 20 重量部未満であることを特徴とするものである。

【 0 0 1 3 】

また、請求項 2 に係る発明は、

請求項 1 記載の発明に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチを前提とし、

上記熱可塑性樹脂が、アクリル樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、フッ素系樹脂、ポリオレフィン樹脂およびポリエステル樹脂から選択される少なくとも一種であることを特徴し、

請求項 3 に係る発明は、

請求項 1 または 2 記載の発明に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチを前提とし、

上記 6 ホウ化物が、平均粒径 1000 nm 以下の微粒子であることを特徴とし、

請求項 4 に係る発明は、

請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の発明に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチを前提とし、

上記 6 ホウ化物が、シラン化合物、チタン化合物、ジルコニア化合物から選択される少なくとも 1 種によって表面処理されていることを特徴とするものである。

【 0 0 1 4 】

次に、請求項5に係る発明は、

熱線遮蔽透明樹脂成形体を前提とし、

請求項1～4のいずれかに記載の熱線遮蔽成分含有マスターバッチを、このマスターバッチの上記熱可塑性樹脂と同種の熱可塑性樹脂成形材料若しくは相溶性を有する異種の熱可塑性樹脂成形材料により希釈・混練し、かつ、所定の形状に成形することによって得られることを特徴とし、

請求項6に係る発明は、

熱線遮蔽透明積層体を前提とし、

請求項5記載の熱線遮蔽透明樹脂成形体を他の透明成形体に積層することにより得られることを特徴とする。

【0015】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態について詳細に説明する。

【0016】

まず、本発明の熱線遮蔽成分含有マスターバッチは、6ホウ化物( $XB_6$ )微粒子を熱可塑性樹脂に均一に分散して調製される。そして、本発明に用いられる6ホウ化物としては、6ホウ化ランタン( $LaB_6$ )、6ホウ化セリウム( $CeB_6$ )、6ホウ化プラセオジウム( $PrB_6$ )、6ホウ化ネオジウム( $NdB_6$ )、6ホウ化ガドリニウム( $GdB_6$ )、6ホウ化テルビウム( $TbB_6$ )、6ホウ化ディスプロシウム( $DyB_6$ )、6ホウ化ホルミウム( $HoB_6$ )、6ホウ化イットリウム( $YB_6$ )、6ホウ化サマリウム( $SmB_6$ )、6ホウ化ユーロピウム( $EuB_6$ )、6ホウ化エルビウム( $ErB_6$ )、6ホウ化ツリウム( $TmB_6$ )、6ホウ化イッテルビウム( $YbB_6$ )、6ホウ化ルテチウム( $LuB_6$ )、6ホウ化ランタンセリウム[( $La, Ce$ ) $B_6$ ]、6ホウ化ストロンチウム( $SrB_6$ )、6ホウ化カルシウム( $CaB_6$ )などがその代表的なものとして挙げられる。

【0017】

また、本発明に使用される上記6ホウ化物微粒子としては、その表面が酸化していないことが好ましいが、通常は僅かに酸化していることが多く、また、微粒子の分散工程で表面の酸化が起こることはある程度避けられない。しかし、その

場合でも熱線遮蔽効果を発現する有効性に変わりはなく、従って、表面が酸化された 6 ホウ化物微粒子も使用することが可能である。

## 【 0 0 1 8 】

また、これ等の 6 ホウ化物微粒子は、結晶としての完全性が高いほど大きい熱線遮蔽効果が得られるが、結晶性が低く X 線回折でブロードな回折ピークを生じるようなものであっても、微粒子内部の基本的な結合が各金属とホウ素の結合から成り立っているものであるならば熱線遮蔽効果を発現するため、本発明において適用することが可能である。

## 【 0 0 1 9 】

また、これ等の 6 ホウ化物微粒子は、灰黒色、茶黒色、緑黒色など有色の粉末であるが、粒径を可視光波長に比べて十分小さくして熱線遮蔽透明樹脂成形体に分散させた状態とすれば、熱線遮蔽透明樹脂成形体に可視光透過性が生じる。しかしながら、赤外光遮蔽能は十分保持できる。この理由は詳細には解明されていないが、これ等微粒子中の自由電子の量が多く、微粒子内部および表面の自由電子によるバンド間間接遷移の吸収エネルギーが丁度可視から近赤外の付近にあるため、この波長領域の熱線が選択的に反射・吸収されることが考えられる。

## 【 0 0 2 0 】

実験によれば、これ等微粒子を十分細かくかつ均一に分散した膜では、透過率が波長 4 0 0 n m ～ 7 0 0 n m の間に極大値を持ち、かつ、波長 7 0 0 n m ～ 1 8 0 0 n m の間に極小値を持ち、更にこれ等の透過率の極大値と極小値の差が 1 5 ポイント以上であることが観察されている。可視光波長が 3 8 0 n m ～ 7 8 0 n m であり、視感度が 5 5 0 n m 付近をピークとする釣鐘型であることを考慮すると、このような熱線遮蔽透明樹脂成形体は、可視光を有効に透過し、それ以外の熱線を有効に反射・吸収する特性を有する。

## 【 0 0 2 1 】

ここで、上記 6 ホウ化物微粒子の単位重量当たりの熱線遮蔽能力は非常に高く、赤外線カットオフ粉末として利用される錫ドープ酸化インジウム ( I T O : 特開平 7 - 6 9 6 3 2 号公報参照 ) やアンチモンドープ酸化錫 ( A T O ) と比較して、 3 0 分の 1 以下の使用量でその効果を発揮することが確認されている。この

ため、全微粒子の使用量を大幅に削減できるので、熱線遮蔽透明樹脂成形体に熱線遮蔽粒子を多量に配合した時に発生する成形体である透明樹脂の物性、特に耐衝撃強度や靱性が低下するという強度面からの問題を解消することが可能となる。更に、6ホウ化物微粒子は使用量を増すと可視光領域に吸収があるために、その添加量を制御することで可視光領域の吸収を自由に制御でき、明るさの調整やプライバシー保護部品等への応用も可能となる。

#### 【0022】

次に、本発明で使用する6ホウ化物微粒子の粒径は熱線遮蔽成分として機能するかぎり任意であるが、好ましくは1000nm以下、より好ましくは200nm以下がよい。粒子径が1000nmよりも大きい微粒子若しくは微粒子が凝集した粗大粒子は、成形した熱線遮蔽透明樹脂成形体の光散乱源となって、透明樹脂成形体が曇って見えるようになるからである。但し、透光性屋根材などは、透明性よりも不透明な光透過性を要求されることがあり、その場合は粒径を大きくして散乱を助長する構成が好ましいが、1000nmより大きくなると熱線遮蔽能そのものが減衰することがあるため1000nm以下が好ましい。

#### 【0023】

また、本発明で使用する6ホウ化物微粒子は、その表面をシラン化合物、チタン化合物、ジルコニア化合物などによって処理されているものを使用することが可能である。これ等化合物で微粒子表面を処理することで6ホウ化物の耐水性を向上させることが可能となる。

#### 【0024】

次に、本発明に使用される熱可塑性樹脂としては、可視光領域の光線透過率が高い透明な熱可塑性樹脂であれば特に制限はなく、例えば、3mm厚の板状成形体としたときのJIS R 3106記載の可視光透過率が50%以上で、JIS K 7105記載のヘイズが30%以下のものが挙げられる。具体的には、アクリル樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、ポリエステル樹脂等、ポリスチレン樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、フッ素系樹脂およびポリオレフィン樹脂を挙げることができる。熱線遮蔽透明樹脂成形体を各種建築物や車両の窓材等に適用することを目的とした場合、透明性、耐衝撃性、耐候性などを

考慮すると、アクリル樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、フッ素系樹脂がより好ましい。また、ポリカーボネート樹脂としては、芳香族ポリカーボネートが好ましい。芳香族ポリカーボネートとしては、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2-ビス(3, 5-ジブromo-4-ヒドロキシフェニル)プロパンに代表される二価のフェノール系化合物の一種以上と、ホスゲンまたはジフェニルカーボネート等で代表されるカーボネート前駆体とから、界面重合、溶融重合または固相重合等の公知の方法によって得られる重合体が挙げられる。また、アクリル樹脂としては、メチルメタクリレート、エチルメタクリレート、プロピルメタクリレート、ブチルメタクリレートを主原料とし、必要に応じて炭素数炭素数1~8のアルキル基を有するアクリル酸エステル、酢酸ビニル、スチレン、アクリロニトリル、メタクリロニトリル等を共重合成分として用いた重合体または共重合体が挙げられる。また、更に多段で重合したアクリル樹脂を用いることもできる。フッ素系樹脂としては、ポリフッ化エチレン、ポリ2フッ化エチレン、ポリ4フッ化エチレン、エチレン-2フッ化エチレン共重合体、エチレン-4フッ化エチレン共重合体、4フッ化エチレン-パーフルオロアルコキシエチレン共重合体などが挙げられる。

## 【0025】

また、6ホウ化物の上記熱可塑性樹脂に対する含有量は、熱可塑性樹脂100重量部に対して0.01重量部以上20重量部未満であり(請求項1)、より好ましくは0.1重量部以上10重量部以下である。この範囲よりも6ホウ化物の含有量が多いと、6ホウ化物微粒子同士の凝集が生じ、樹脂中での分散が不十分となり、成形した熱線遮蔽透明樹脂成形体のヘイズ値が上昇する場合がある。また、熱線遮蔽成分含有マスターバッチを熱可塑性樹脂成形材料で希釈・混練する時に希釈ムラが発生する可能性がある。反対に上記範囲よりも6ホウ化物の含有量が少ないと、成形する熱線遮蔽透明樹脂成形体の厚みにも依存するが、特に成形する透明樹脂成形体が100 $\mu$ m以下のフィルムでは、十分な熱線遮蔽能が得られないことがある。

## 【0026】

次に、6ホウ化物微粒子の熱可塑性樹脂への分散方法は、微粒子が均一に樹脂

に分散する方法であれば任意に選択できる。例としては、ビーズミル、ボールミル、サンドミル、超音波分散などの方法を用い、上記微粒子を任意の溶剤に分散した6ホウ化物微粒子分散液を調製し、その分散液と熱可塑性樹脂の粉粒体またはペレット、および必要に応じて他の添加剤をリボンプレンダー、タンブラー、ナウターミキサー、ヘンシェルミキサー、スーパーミキサー、プラネタリーミキサー等の混合機、およびバンバリーミキサー、ニーダー、ロール、ニーダールーダー、一軸押出機、二軸押出機等の混練機を使用して溶剤を除去しながら均一に溶融混合する方法を用いて、熱可塑性樹脂に微粒子を均一に分散した混合物を調製することができる。更に、6ホウ化物微粒子分散液の溶剤を公知の方法で除去し、得られた粉末と熱可塑性樹脂の粉粒体またはペレット、および必要に応じて他の添加剤を均一に溶融混合する方法を用いて熱可塑性樹脂に微粒子を均一に分散した混合物を調整することもできる。そのほか、分散処理をしていない6ホウ化物微粒子の粉末を熱可塑性樹脂に直接添加し、均一に溶融混合する方法を用いることもでき、熱可塑性樹脂に6ホウ化物微粒子が均一に分散されていればよく、これ等の方法に限定されない。

#### 【0027】

このようにして得られた混合物をベント式一軸若しくは二軸の押出機で混練し、ペレット状に加工することにより本発明に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチを得ることができる。

#### 【0028】

上記ペレットは、最も一般的な溶融押出されたストランドをカットする方法により得ることができる。従って、その形状としては円柱状や角柱状のものを挙げることができる。また、溶融押出物を直接カットするいわゆるホットカット法を採用することも可能である。かかる場合には球状に近い形状を取ることが一般的である。

#### 【0029】

このように本発明の熱線遮蔽成分含有マスターバッチは、いずれの形態、または形状を採り得るものであるが、熱線遮蔽透明樹脂成形体を成形するときに熱線遮蔽成分含有マスターバッチの希釈に使用される熱可塑性樹脂成形材料と同一の

形態および形状が好ましい。

【 0 0 3 0 】

次に、本発明に係る熱線遮蔽透明樹脂成形体は、上記熱線遮蔽成分含有マスターバッチを同種の熱可塑性樹脂成形材料あるいはマスターバッチの熱可塑性樹脂と相溶性を有する異種の熱可塑性樹脂成形材料で希釈・混練し、所定の形状に成形することによって得られる。

【 0 0 3 1 】

上記熱線遮蔽透明樹脂成形体の形状は、必要に応じて任意の形状に成形可能であり、平面状および曲面状に成形することが可能である。また、熱線遮蔽透明樹脂成形体の厚さは、板状からフィルム状まで必要に応じて任意の厚さに調整することが可能である。さらに平面状に形成した樹脂シートは、後加工によって球面状等任意の形状に成形することができる。

【 0 0 3 2 】

上記熱線遮蔽透明樹脂成形体の成形方法としては、射出成形、押出成形、圧縮成形または回転成形等の任意の方法を挙げることができる。特に、射出成形により成形品を得る方法と、押出成形により成形品を得る方法が好適に採用される。押出成形により板状、フィルム状の成形品を得る方法として、Tダイなどの押出機を用いて押出した溶融熱可塑性樹脂を冷却ロールで冷却しながら引き取る方法により製造される。上記射出成形品は、自動車の窓ガラスやルーフ等の車体に好適に使用され、押出成形により得られた板状、フィルム状の成形品は、アーケードやカーポート等の建造物に好適に使用される。

【 0 0 3 3 】

上記熱線遮蔽透明樹脂成形体は、それ自体のみを、窓ガラス、アーケード等の構造材に使用することができるほか、無機ガラス、樹脂ガラス、樹脂フィルムなどの他の透明成形体に任意の方法で積層し、一体化した熱線遮蔽透明積層体として、構造材に使用することもできる。例えば、予めフィルム状に成形した熱線遮蔽透明樹脂成形体を無機ガラスに熱ラミネート法により積層一体化することで、熱線遮蔽機能、飛散防止機能を有する熱線遮蔽透明積層体を得ることができる。また、熱ラミネート法、共押出法、プレス成形法、射出成形法等により、熱線遮



蔽透明樹脂成形体の成形と同時に他の透明成形体に積層一体化することで、熱線遮蔽透明積層体を得ることも可能である。上記熱線遮蔽透明積層体は、相互の成形体の持つ利点を有効に発揮させつつ、相互の欠点を補完することで、より有用な構造材として使用することができる。

## 【 0 0 3 4 】

更に、本発明に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチは、一般的な添加剤を配合することも可能である。例えば、必要に応じて任意の色調を与えるため、アゾ系染料、シアニン系染料、キノリン系、ペリレン系染料、カーボンブラック等、一般的に熱可塑性樹脂の着色に利用されている染料、顔料の他、ヒンダードフェノール系、リン系等の安定剤、離型剤、ヒドロキシベンゾフェノン系、サリチル酸系、HALS系、トリアゾール系、トリアジン系等の紫外線吸収剤、カップリング剤、界面活性剤、帯電防止剤等を、これ等の有効発現量配合したものを添加剤として使用することができる。

## 【 0 0 3 5 】

以上、詳細に述べたように熱線遮蔽成分として6ホウ化物を熱可塑性樹脂に均一に分散させた本発明に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチを用いることにより、高コストの物理成膜法や複雑な工程を用いることなく熱線遮蔽機能を有しかつ可視光域に高い透過性能を有する熱線遮蔽透明樹脂成形体並びに熱線遮蔽透明積層体を提供することが可能となる。

## 【 0 0 3 6 】

## 【実施例】

以下、本発明の実施例について具体的に説明するが、本発明は以下の実施例により何ら制限されるものでない。

## 【 0 0 3 7 】

また、以下の実施例は、6ホウ化ランタンを適用した例のみを記載しているが、本出願人が提案している特開2000-96034号公報に記載された実施例群と同様に、他の6ホウ化物についても6ホウ化ランタンと同様の効果が得られることを確認している。

## 【 0 0 3 8 】

## 〔実施例 1〕

平均粒径 67 nm の 6 ホウ化ランタン微粒子 200 g、トルエン 700 g、水および分散剤適量を混ぜ、直径 4 mm のジルコニアボールを用いて 100 時間ボールミル混合して 1 kg の 6 ホウ化ランタン微粒子分散液を調製した（以下、A 液と略称する）。

## 【0039】

更に、スプレードライヤーを用いて上記 A 液のトルエンを除去し、6 ホウ化ランタン微粒子分散粉を得た（以下、A 粉と略称する）。

## 【0040】

次に、得られた A 粉を熱可塑性樹脂であるポリカーボネート樹脂ペレットに  $\text{LaB}_6$  濃度が 2.0 重量%（樹脂 100 重量部に対して 2.0 重量部に相当する）となるように添加し、ブレンダーで均一に混合した後、二軸押出機で熔融混練し、押出されたストランドをペレット状にカットし、熱線遮蔽成分含有マスターバッチを得た（以下、マスターバッチ A と略称する）。

## 【0041】

次に、マスターバッチ A をポリカーボネート樹脂ペレットで  $\text{LaB}_6$  濃度が 0.01 重量% となるように希釈し、ブレンダーで均一に混合した後、T ダイを用いて厚さ 1.0 mm に押出成形し、6 ホウ化ランタン微粒子が樹脂全体に均一に分散した熱線遮蔽透明樹脂成形体を得た。

## 【0042】

作製したポリカーボネートシート（熱線遮蔽透明樹脂成形体）の分光特性は日立製作所（株）製の分光光度計 U-4000 を用いて測定し、JIS R3106 に従って日射透過率、可視光透過率を算出した。

## 【0043】

その結果を以下の表 1 に示す。

## 【0044】

## 〔実施例 2〕

熱可塑性樹脂としてアクリル樹脂ペレットを使用した以外は実施例 1 と同様の方法で熱線遮蔽成分含有マスターバッチを得た。すなわち、A 粉、アクリル樹脂

ペレットを表1の「マスターバッチ組成」欄に記載された数値になるように混合し、かつ、二軸押出機で熔融混練し、押出されたストランドをペレット状にカットし、本実施例に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチを得た（以下、マスターバッチBと略称する）。

## 【0045】

次に、アクリル樹脂ペレットを使用して希釈した以外は実施例1と同様の方法により熱線遮蔽透明樹脂成形体を得た。すなわち、マスターバッチBをアクリル樹脂ペレットで表1の「熱線遮蔽透明樹脂成形体の組成」欄に記載された数値になるように希釈し、ブレンダーで均一に混合した後、Tダイを用いて厚さ1.0 mmに押出成形し、6ホウ化ランタン微粒子が樹脂全体に均一に分散した熱線遮蔽透明樹脂成形体を得た。この透明樹脂成形体の光学特性も表1に示す。

## 【0046】

## 〔実施例3〕

熱可塑性樹脂としてポリエーテルイミド樹脂ペレットを使用した以外は実施例1と同様の方法で熱線遮蔽成分含有マスターバッチを得た。すなわち、A粉、ポリエーテルイミド樹脂ペレットを表1の「マスターバッチ組成」欄に記載された数値になるように混合し、かつ、二軸押出機で熔融混練し、押出されたストランドをペレット状にカットし、本実施例に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチを得た（以下、マスターバッチCと略称する）。

## 【0047】

次に、ポリエーテルイミド樹脂ペレットを使用して希釈した以外は実施例1と同様の方法により熱線遮蔽透明樹脂成形体を得た。すなわち、マスターバッチCをポリエーテルイミド樹脂ペレットで表1の「熱線遮蔽透明樹脂成形体の組成」欄に記載された数値になるように希釈し、ブレンダーで均一に混合した後、Tダイを用いて厚さ1.0 mmに押出成形し、6ホウ化ランタン微粒子が樹脂全体に均一に分散した熱線遮蔽透明樹脂成形体を得た。この透明樹脂成形体の光学特性も表1に示す。

## 【0048】

## 〔実施例4〕

熱可塑性樹脂としてポリエチレンテレフタレート樹脂ペレットを使用した以外は実施例 1 と同様の方法で熱線遮蔽成分含有マスターバッチを得た。すなわち、A 粉、ポリエチレンテレフタレート樹脂ペレットを表 1 の「マスターバッチ組成」欄に記載された数値になるように混合し、かつ、実施例 1 と同様にして本実施例に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチを得た（以下、マスターバッチ D と略称する）。

## 【 0 0 4 9 】

次に、このマスターバッチ D をポリエチレンテレフタレート樹脂ペレットで表 1 の「熱線遮蔽透明樹脂成形体の組成」欄に記載された数値になるように希釈し、ブレンダーで均一に混合した後、T ダイを用いて厚さ 0. 1 mm に押出成形し、6 ホウ化ランタン微粒子が樹脂全体に均一に分散した熱線遮蔽透明樹脂成形体を得た。この透明樹脂成形体の光学特性も表 1 に示す。

## 【 0 0 5 0 】

## 〔実施例 5〕

熱可塑性樹脂として E T F A （エチレン－4 フッ化エチレン共重合体）樹脂ペレットを使用した以外は実施例 1 と同様の方法で熱線遮蔽成分含有マスターバッチを得た。すなわち、A 粉、E T F A 樹脂ペレットを表 1 の「マスターバッチ組成」欄に記載された数値になるように混合し、かつ、実施例 1 と同様にして本実施例に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチを得た（以下、マスターバッチ E と略称する）。

## 【 0 0 5 1 】

次に、E T F A 樹脂ペレットを使用して希釈した以外は実施例 4 と同様の方法により熱線遮蔽透明樹脂成形体を得た。すなわち、マスターバッチ E を E T F A 樹脂ペレットで表 1 の「熱線遮蔽透明樹脂成形体の組成」欄に記載された数値になるように希釈し、かつ、実施例 4 と同様にして 6 ホウ化ランタン微粒子が樹脂全体に均一に分散した熱線遮蔽透明樹脂成形体を得た。この透明樹脂成形体の光学特性も表 1 に示す。

## 【 0 0 5 2 】

## 〔実施例 6〕

上記A液950gにメチルトリメトキシシラン50gを添加し、メカニカルスターラーで1時間攪拌し混合した後、スプレードライヤーを用いてトルエンを除去し、シラン化合物にて表面処理を施した6ホウ化ランタン微粒子分散粉を得た（以下、B粉と略称する）。次に、実施例1と同様の方法で、B粉、ポリカーボネート樹脂ペレットを表1の「マスターバッチ組成」欄に記載された数値になるように混合し、かつ、実施例1と同様にして本実施例に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチを得た（以下、マスターバッチFと略称する）。

## 【0053】

そして、実施例1と同様の方法で、マスターバッチFをポリカーボネート樹脂ペレットで表1の「熱線遮蔽透明樹脂成形体の組成」欄に記載された数値になるように希釈し、かつ、実施例1と同様にして6ホウ化ランタン微粒子が樹脂全体に均一に分散した熱線遮蔽透明樹脂成形体を得た。この透明樹脂成形体の光学特性も表1に示す。

## 【0054】

## 【比較例】

上記A粉を熱可塑性樹脂であるポリカーボネート樹脂ペレットに $\text{LaB}_6$ 濃度が16.7重量%（樹脂100重量部に対して20.0重量部に相当する）となるように添加し、ブレンダーで均一に混合した後、二軸押出機で熔融混練し、押出されたストランドをペレット状にカットし、比較例に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチを得た（以下、マスターバッチGと略称する）。

## 【0055】

次に、マスターバッチGをポリカーボネート樹脂ペレットで $\text{LaB}_6$ 濃度が0.01重量%となるように希釈し、ブレンダーで均一に混合した後、Tダイを用いて厚さ1.0mmに押出成形し、6ホウ化ランタン微粒子が樹脂全体に均一に分散した比較例に係る熱線遮蔽透明樹脂成形体を得た。この透明樹脂成形体の光学特性も表1に示す。

## 【0056】

## 【表1】

	マスターバッチ組成		熱線遮蔽透明樹脂成形体の組成 LaB <sub>6</sub> 濃度 (wt%)	透明樹脂成形体の厚み (mm)	光学特性 (%)	
	使用樹脂	LaB <sub>6</sub> 濃度 (重量部)			可視光透過率	日射透過率
実施例 1	ポリカーボネート	2.0	0.01	1.0	78.2	58.9
実施例 2	アクリル	5.3	0.01	1.0	78.0	59.0
実施例 3	ポリエーテルイミド	2.0	0.01	1.0	77.9	58.5
実施例 4	ポリエチレンテレフタレート	3.1	0.10	0.1	78.5	58.8
実施例 5	エチレン-4-フッ化エチレン	2.0	0.10	0.1	78.4	58.4
実施例 6	ポリカーボネート	2.0	0.01	1.0	77.7	59.0
比較例	ポリカーボネート	20.0	0.01	1.0	82.3	63.0

注) ①マスターバッチ組成における LaB<sub>6</sub> 濃度欄の数値は樹脂 100 重量部に対する重量部を示す。

②実施例 6 は表面処理が施された 6 ホウ化ランタン微粒子を使用する。

# [ 評 価 ]

## 1. 実施例並びに比較例に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチおよび熱線遮蔽透明樹脂成形体の外観評価

比較例に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチは、その  $\text{LaB}_6$  含有量がポリカーボネート 100 重量部に対して 20.0 重量部と多いため、マスターバッチ作製時に  $\text{LaB}_6$  微粒子を均一に分散することができず、この結果、比較例に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチを用いて製造された熱線遮蔽透明樹脂成形体には粗粒がみられ、成形体表面がザラザラしていた。

### 【 0 0 5 7 】

また、比較例に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチをポリカーボネート樹脂ペレットに希釈する工程において、ポリカーボネート樹脂ペレットに対するマスターバッチの添加量が非常に少量であるため（ $\text{LaB}_6$  含有量がポリカーボネート 100 重量部に対して 20.0 重量部と多いため、その分、希釈用ポリカーボネート樹脂ペレットに対する熱線遮蔽成分含有マスターバッチの配合割合は少なくなる）、 $\text{LaB}_6$  微粒子が樹脂成形体に均一に分布しておらず、色ムラが見られた。また、この不均一分布に起因して、比較例に係る熱線遮蔽透明樹脂成形体の日射透過率は、表 1 のデータで 63.0 % と各実施例に係る熱線遮蔽透明樹脂成形体より悪い数値になっていることが確認される。

### 【 0 0 5 8 】

これに対し、その  $\text{LaB}_6$  含有量が熱可塑性樹脂 100 重量部に対して 0.01 重量部以上 20 重量部未満に設定されている各実施例に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチは比較例のような上記不都合は確認されず、各実施例に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチを用いて良好な熱線遮蔽透明樹脂成形体が製造できることを確認することができた。

## 2. 実施例 1、6 に係る熱線遮蔽透明樹脂成形体の耐水性試験の評価

実施例 1、6 に係る熱線遮蔽透明樹脂成形体の耐水性を評価するため、6 ホウ化物微粒子を無機バインダーに含有させた熱線遮蔽用塗布液を用いて形成した以下の熱線遮蔽透明積層体における耐水性との比較を行った。

### 【 0 0 5 9 】

## (熱線遮蔽透明積層体の製造)

平均重合度で4～5量体である多摩化学工業株式会社製エチルシリケート40を10g、エタノール27g、5%塩酸水溶液8g、水5gで調製したエチルシリケート溶液をよく混合・攪拌して、エチルシリケート混合液50gを調製した(B液と略称する)。

## 【0060】

次に、実施例1における上記A液とこのB液を混合し、更にジアセトンアルコールで希釈して、 $\text{LaB}_6$ 濃度が0.2重量%、 $\text{SiO}_2$ 濃度が2.5重量%となるように熱線遮蔽用塗布液を調製した。

## 【0061】

そして、この熱線遮蔽用塗布液15gをスピンコーターで厚さ2.0mmのポリカーボネート樹脂上に塗布し、100℃の電気炉に入れて30分間加熱し、ポリカーボネートシート上に熱線遮蔽膜を形成させた熱線遮蔽透明積層体を製造した。この熱線遮蔽透明積層体の光学特性は、可視光透過率：78%、日射透過率：57.9%であった。

## 【0062】

次に、得られた熱線遮蔽透明積層体を、温度80℃、湿度95%RHに調整した恒温恒湿槽に100日間保管し、再び光学特性を測定したところ、可視光透過率：81%、日射透過率：62.4%であり、可視光透過率が3%、日射透過率が4.5%上昇していた。

## 【0063】

他方、実施例1で得られた熱線遮蔽ポリカーボネートシートを、温度80℃、湿度95%RHに調整した恒温恒湿槽に100日間保管し、再び光学特性を測定したところ、可視光透過率：78.5%、日射透過率：59.2%であり、上記熱線遮蔽透明積層体と比較して、可視光透過率が0.3%、日射透過率が0.3%とわずかに上昇していた。

## 【0064】

また、実施例6で得られた熱線遮蔽ポリカーボネートシートを、水に温度80℃、湿度95%RHに調整した恒温恒湿槽に100日間保管し、再び光学特性を



測定したところ、可視光透過率：77.7%、日射透過率：59.0%であり、光学特性の変化は見られなかった。

【0065】

これ等結果から、熱線遮蔽用塗布液を用いて得られた熱線遮蔽透明積層体においてはその熱線遮蔽膜が非常に薄いことが原因となり、多くの6ホウ化ランタン微粒子が水分と接触し、6ホウ化ランタン微粒子の分解が起って熱線遮蔽性能が低下していることが確認される。

【0066】

これに対し、実施例1で得られた熱線遮蔽ポリカーボネートシートでは、6ホウ化ランタン微粒子がポリカーボネート樹脂に均一に分散され、6ホウ化ランタン微粒子の水分との接触が少なくなるため耐水性が改善されていることが確認される。

【0067】

また、実施例6で得られた熱線遮蔽ポリカーボネートシートにおいては、表面をシランカップリング剤で処理された6ホウ化ランタン微粒子が適用されているため、実施例1で得られた熱線遮蔽ポリカーボネートシートより耐水性が更に改善されていることが確認される。

【0068】

【発明の効果】

請求項1～4記載の発明に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチによれば、熱可塑性樹脂と6ホウ化物( $XB_6$ 、但し、Xは、La、Ce、Pr、Nd、Gd、Tb、Dy、Ho、Y、Sm、Eu、Er、Tm、Yb、Lu、SrおよびCaから選択される少なくとも1種以上)とを主成分とし、かつ、熱線遮蔽成分である6ホウ化物の上記熱可塑性樹脂に対する含有量が熱可塑性樹脂100重量部に対して0.01重量部以上20重量部未満に設定されているため、この熱線遮蔽成分含有マスターバッチを適用することにより高コストの物理成膜法や複雑な工程を用いることなく熱線遮蔽機能を有しかつ可視光域に高い透過性能を有する熱線遮蔽透明樹脂成形体並びに熱線遮蔽透明積層体を提供することが出来る効果を有する。

【 0 0 6 9 】

特に、請求項 4 記載の発明に係る熱線遮蔽成分含有マスターバッチによれば、  
6 ホウ化合物が、シラン化合物、チタン化合物、ジルコニア化合物から選択される少なくとも 1 種によって表面処理されているため、耐水性をより改善できる効果を有する。

【 0 0 7 0 】

また、請求項 5 記載の発明に係る熱線遮蔽透明樹脂成形体並びに請求項 6 記載の発明に係る熱線遮蔽透明積層体を、自動車、建物の窓、カーポート、アーケード等として用いることで、入射する太陽エネルギーを遮断し、冷房負荷や人の熱暑感を軽減できる効果を有すると共に、省エネルギーにも役立ち、環境的にも有用性が高い効果を有する。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 優れた可視光線透過能と高い熱線遮蔽機能を有する熱線遮蔽透明樹脂成形体を高コストの物理成膜法などを用いることなく簡便な方法で作製できる熱線遮蔽成分含有マスターバッチを提供し、かつ、熱線遮蔽透明樹脂成形体と熱線遮蔽透明積層体を提供すること。

【解決手段】 この熱線遮蔽成分含有マスターバッチは、熱可塑性樹脂と6ホウ化物( $\text{XB}_6$ 、但し、Xは、La、Ce、Pr、Nd、Gd、Tb、Dy、Ho、Y、Sm、Eu、Er、Tm、Yb、Lu、SrおよびCaから選択される少なくとも1種以上)とを主成分とし、かつ、熱線遮蔽成分である6ホウ化物の上記熱可塑性樹脂に対する含有量が熱可塑性樹脂100重量部に対して0.01重量部以上20重量部未満であることを特徴とする。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000183303]

1. 変更年月日 1990年 8月 6日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都港区新橋5丁目11番3号

氏 名 住友金属鉱山株式会社